

## Untersuchung elektrokinetischer Strömungen in Mikrokanälen mit internen Elektroden mithilfe des Mikro-PIV-Verfahrens

### Investigation of electrokinetic flows in micro-channels with internal electrodes by means of the micro-PIV technique

**Peter Ehrhard, Carsten Gizewski**

Strömungsmechanik, Bio- und Chemieingenieurwesen, TU Dortmund  
Emil-Figge-Str. 68, D-44227 Dortmund

elektrokinetische Strömung, Mikrokanal, Mikro-PIV, interne Elektroden, EDL  
electrokinetic flow, microchannel, micro-PIV, internal electrodes, EDL

#### Zusammenfassung

Zur Validierung numerischer Simulationen zu elektrokinetischen Strömungen werden Experimente durchgeführt. Die experimentellen Untersuchungen erfolgen mithilfe des Mikro-PIV-Verfahrens. Bei diesem Verfahren werden kleine Partikel verwendet, um die Strömung sichtbar zu machen, sodass aus der Partikelbewegung auf die Strömung der Flüssigkeit geschlossen werden kann. Kritisch ist im vorliegenden Fall die Tatsache, dass durch das (inhomogene) elektrische Feld auch elektrische Kräfte auf die Partikel wirken. Die Partikel sind in der Regel elektrisch nicht neutral, um eine Agglomeration zu verhindern. Dadurch wird die Partikelbewegung sowohl durch Strömungskräfte als auch durch elektrische Kräfte verursacht, wobei die elektrischen Kräfte im vorliegenden Fall deutlich stärker sind. Das aus der Partikelbewegung ermittelte Geschwindigkeitsfeld entspricht demnach nicht mehr dem Geschwindigkeitsfeld der Flüssigkeit. Wir stellen ein Verfahren vor, mit welchem es möglich wird, die (elektroosmotische) Strömung zu extrahieren. Die Grundlage hierfür ist die Abhängigkeit der elektrophoretischen Kräfte von der Richtung des elektrischen Feldes, sodass aus mehreren Messungen mit unterschiedlich gerichtetem elektrischem Feld die elektrophoretischen Effekte durch Mittelung eliminiert werden können.

#### Einleitung

Die Miniaturisierung von Analyse-Systemen (vgl. *μTAS*, *lab on a chip*) verspricht hocheffiziente, reproduzierbare und kostengünstige chemische und biologische Analysen, im Vergleich zu manuell im Labor durchgeführten Analysen. Dies bedingt u.a., dass Transport- und Mischprozesse, sowie gegebenenfalls Trennprozesse, in Mikrokanälen durchzuführen sind. Aufgrund kleiner Reynolds-Zahlen in den Mikrokanälen sind einige dieser Prozesse ohne bewegte mechanische Teile und ohne Turbulenz zu realisieren. Eine Alternative aktiv Transport und Vermischung von Flüssigkeiten zu erreichen, besteht in der Anwendung programmierbarer elektrischer Felder. Möglich ist dies im Falle einer elektrisch nicht neutralen Schicht an der flüssig/fest Phasengrenze, der sog. elektrischen Doppelschicht (EDL), im Zusammenspiel mit den angelegten elektrischen Feldern. Die EDL tritt auf, wenn Ladungsträger (z.B. Ionen) in der Flüssigkeit vorliegen. Meist werden die elektrischen Felder durch außenliegende Elektroden aufgebaut, was jedoch hohe elektrische Spannungen bedingt und deshalb Elektrodenreaktionen (z.B. Elektrolyse) mit sich bringt. Außerdem sind solche elektrische Felder in der Regel homogen und längs des Kanals gerichtet. In der vorliegenden

Arbeit werden deshalb durch interne Elektroden auf den Kanalwänden recht flexible elektrische Felder erzeugt, bei deutlich geringerer elektrischer Spannung. So wird es möglich, Elektrodenreaktionen zu vermeiden und neben wandtangentialen Kräften auch andere Kraftanteile (z.B. zum Mischen der Flüssigkeit) in die Strömung einzubringen. Die Grundkonfiguration eines Mikrokanals mit internen Elektroden ist in Abb. 1 dargestellt.

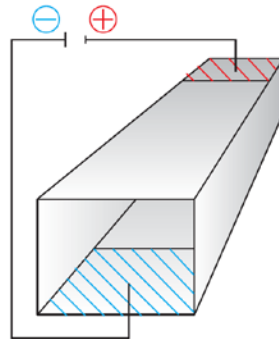


Abb. 1: Rechteckiger Mikrokanal mit einem Paar interner Elektroden.

### Numerische Simulationen zur elektroosmotischen Flüssigkeitsströmung

Mit einem hybriden Simulationsverfahren von Stieglitz und Ehrhard (2010), hat Gizewski (2016) numerische Simulationen durchgeführt, welche die Bewegung der Flüssigkeit im Mikrokanal, alleine durch die Wirkung des angelegten elektrischen Feldes, zeigt. In allen Fällen wird hierbei die Haftung der Flüssigkeit an festen Wänden sichergestellt und ein periodisches Element mit einem Paar von Elektroden wird als Rechengebiet verwendet. Infolge der periodischen Randbedingungen auf beiden Seiten des Rechengebietes, kann man sich die Anordnung der Elektroden nach beiden Seiten hin bei gleichem Abstand fortgesetzt vorstellen. Elektrisch betrachtet, besitzen die Elektroden ein vorgegebenes elektrisches Potential ( $\pm 5$  V) und die isolierenden Wände ein negatives (Zeta-) Potential (ca.  $-30$  mV). Alle Parameter der Simulationen sind so gewählt, dass sie dem experimentell realisierten Aufbau entsprechen. Variiert wird in den Simulationen (wie auch im Experiment) lediglich der Versatz zwischen oberer und unterer Elektrode.

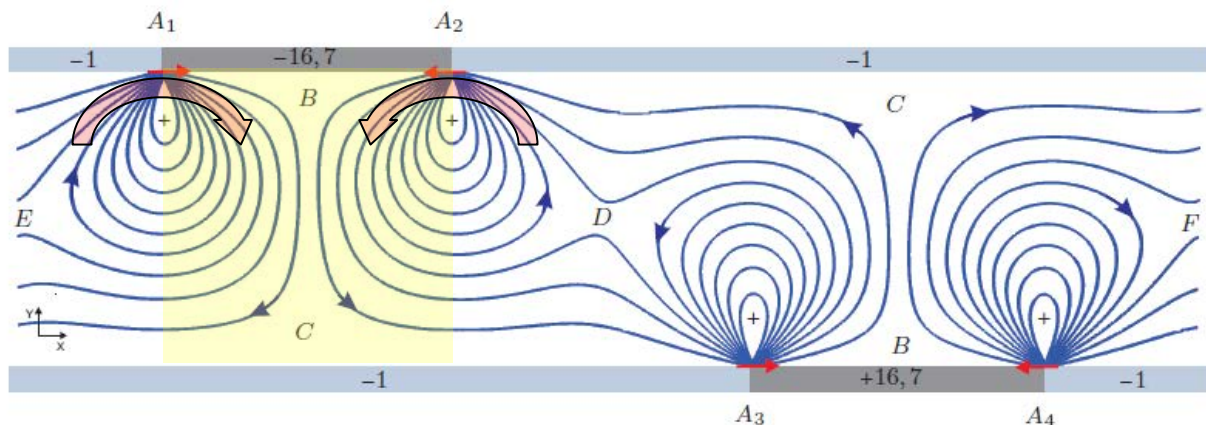


Abb. 2: Stromlinien im Mittenschnitt des Mikrokanals bei 200% Elektrodenversatz.

Abb. 2 zeigt das Simulationsergebnis für einen Elektrodenversatz von 200%. Dies bedeutet, dass die untere Elektrode gegenüber der oberen um zwei Elektrodenbreiten versetzt angeordnet ist. Wir erkennen unter der oberen (negativ geladenen) Elektrode zwei symmetrische Wirbel, deren Kerne nahe der Elektrodenkante liegen, und die gegenläufig zur Elektrodenmitte hin drehen. Der gleiche Befund ist über der unteren (positiv geladenen) Elektrode zu erkennen. Es zeigt sich im Übrigen, dass die Topologie und Drehrichtung dieser elektro-

osmotischen Strömung vollständig erhalten bleibt, wenn die Polarität beider Elektroden vertauscht wird – ein überraschendes und wichtiges Ergebnis.

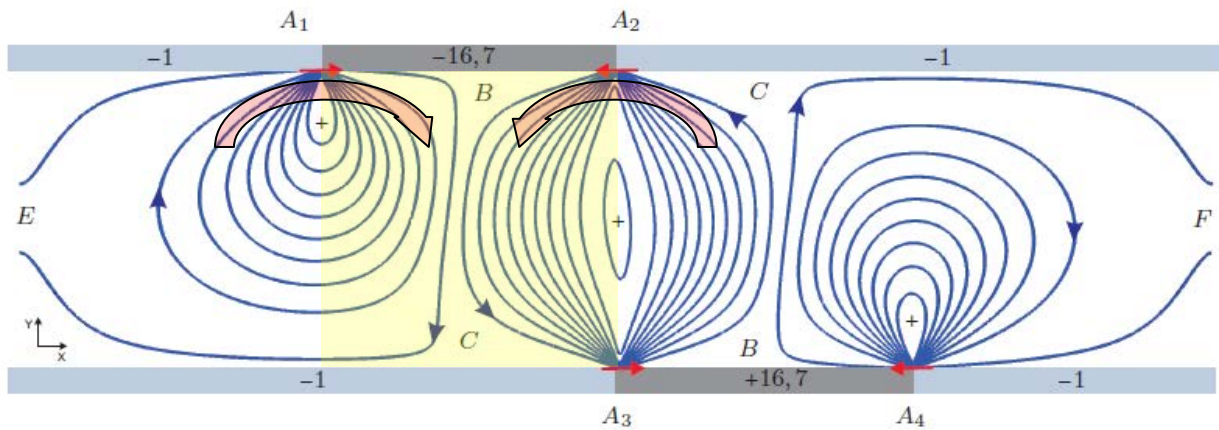


Abb. 3: Stromlinien im Mittenschnitt des Mikrokanals bei 100% Elektrodenversatz.

Abb. 3 zeigt das Simulationsergebnis für einen Elektrodenversatz von 100%. Auch in diesem Fall befinden sich unter der oberen Elektrode zwei Wirbel, die in Richtung der Elektrodenmitte gegenläufig drehen. Allerdings sind für diesen Elektrodenversatz beide Wirbel nicht mehr spiegelsymmetrisch, sondern ein starker Wirbel reicht über die komplette Höhe des Mikrokanals. Der zweite Wirbel ist schwächer und sein Kern verbleibt nahe der Elektrodenkante. Über der unteren Elektrode zeigt sich eine ähnliche, unsymmetrische Wirbeltopologie, wobei beide Wirbel ebenfalls gegenläufig zur Elektrodenmitte hin drehen. Wird die Polarität der beiden Elektroden vertauscht, so bleibt auch in dieser unsymmetrischen Ausbildung die Drehrichtung aller Wirbel erhalten.

### Experimenteller Aufbau und experimentelle Methoden

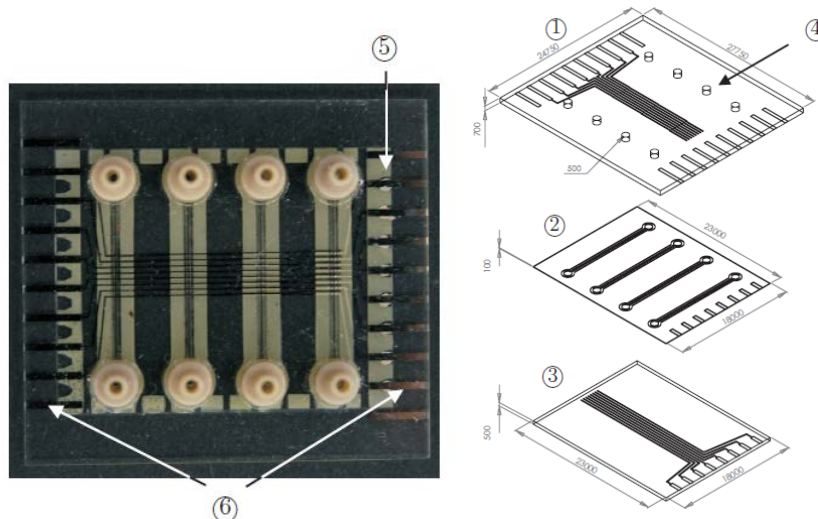


Abb. 4: Ansicht und Aufbau des Mikrochips mit vier Kanälen bei 0, 50, 100, 200% Elektrodenversatz.

Der Mikrochip zur Realisierung der rechteckigen Mikrokanäle ist aus drei Schichten aufgebaut (vgl. Abb.4). Die obere Glasschicht (1) verfügt über acht Bohrungen (4) zur Zu- und Ableitung der Flüssigkeit, wobei auf jede Bohrung ein Schlauchanschluss aus Kunststoff aufgeklebt ist. Weiterhin sind auf der Unterseite der oberen Glasschicht eine Kontaktleiste sowie acht parallele Elektroden der Breite 100  $\mu\text{m}$  mit Platin aufgedampft. Diese Elektroden verlau-

fen nicht gerade, sondern werden stufenförmig zwischen den Mikrokanälen um jeweils 50  $\mu\text{m}$  versetzt. Die mittlere Schicht (2) besteht aus dem Photolack SU-8, der durch das Siebdruckverfahren strukturiert aufgebracht wird. Hier finden sich die vier rechteckigen Mikrokanäle, welche durch die Schichtdicke des SU-8 eine Höhe von ca. 70  $\mu\text{m}$  aufweisen, während die Breite zu 200  $\mu\text{m}$  und die Länge zu 1500  $\mu\text{m}$  gewählt werden. Die untere Glasschicht (3) besitzt wiederum eine Kontakteleiste und acht gerade durchlaufende Elektroden von 100  $\mu\text{m}$  Breite, welche mit Platin aufgedampft sind. Aufgrund des stufenförmigen Verlaufs der oberen Elektroden liegen die Elektroden auf den Innenwänden des ersten Mikrokanals genau übereinander, während im zweiten Mikrokanal die obere Elektrode gegenüber der unteren um 50  $\mu\text{m}$  (d.h. 50% der Elektrodenbreite) versetzt ist. So entstehen innerhalb den vier rechteckigen Mikrokanälen jeweils acht interne Elektrodenpaare mit einem Versatz von 0, 50, 100, 200%. Weitere Details zum Mikrochip finden sich in Gizewski (2016). Der Mikrochip wurde im Übrigen von der *Fa. GeSim*, Radeberg, nach unseren Vorgaben gefertigt.

Das Ziel der Arbeit besteht in der Messung der elektroosmotischen Strömung (vgl. Abb. 2, 3) und mithin in der Validierung des physikalischen und numerischen Berechnungsverfahrens. Hierzu steht prinzipiell das  $\mu\text{PIV}$ -Verfahren (vgl. Santiago et al. (1998), Meinhart et al. (1999)) zur Verfügung. Der Mikrochip wird hierzu auf ein invertiertes Mikroskop platziert, sodass durch die Glaswände ein optischer Zugang zu den rechteckigen Mikrokanälen besteht, lediglich abgeschattet im Bereich der aufgedampften Elektroden (vgl. Abb. 5). Es wird folglich möglich die beiden Geschwindigkeitskomponenten ( $u, v$ ) in der (horizontalen) Fokalebene zu messen. Gleichwohl zeigt der Vergleich mit den Abb. 2 und 3, dass die Wirbelstruktur im vertikalen Schnitt durch das Strömungsfeld auftreten, sodass hierfür die vertikale Komponente  $w$  der Geschwindigkeit wichtig ist. Diese Komponente kann mit einem herkömmlich  $\mu\text{PIV}$  allerdings nicht direkt gemessen werden.

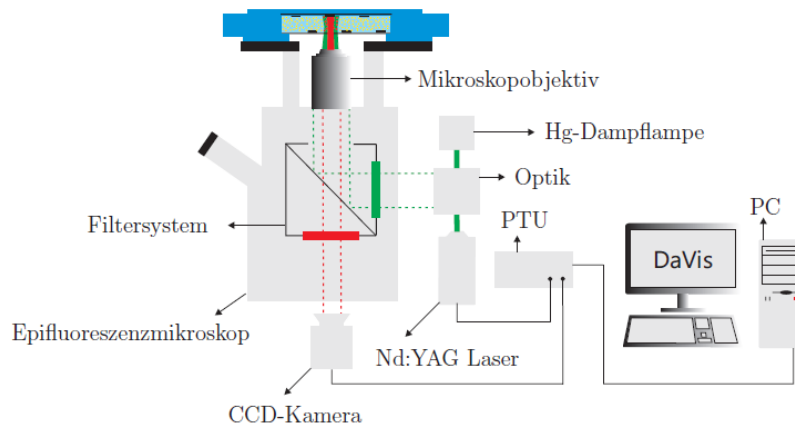


Abb. 5: Aufbau des  $\mu\text{PIV}$  und optischer Zugang zu dem Mikrokanal.

Zwischen den drei Komponenten der Strömungsgeschwindigkeit besteht bei einer inkompressiblen Flüssigkeit ein Zusammenhang in Form der Kontinuitätsgleichung. Die nicht zugängliche Komponente  $w$  kann demnach alternativ durch eine der Integrationen gemäß

$$w = -\int_0^z \left( \frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} \right) dz, \quad w = \int_h^z \left( \frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} \right) dz, \quad (1)$$

bestimmt werden. Wir müssen demnach die Felder  $u$  und  $v$  im kompletten Mikrokanal messen und, ausgehend vom unteren oder oberen Rand die Gradienten integrieren, um die dritte Komponente  $w$  zu bestimmen. Offensichtlich sind die Gradienten innerhalb der Integranden in Gl. (1) durch die Messung nur an diskreten Punkten bekannt und zudem fehlerbehaftet. Durch das „meeting-point“-Verfahren von Bown et al. (2006) wird jedoch eine Methode be-

reitgestellt, die beide Integrale so kombiniert, dass möglichst kleine Fehler im Ergebnis verbleiben.

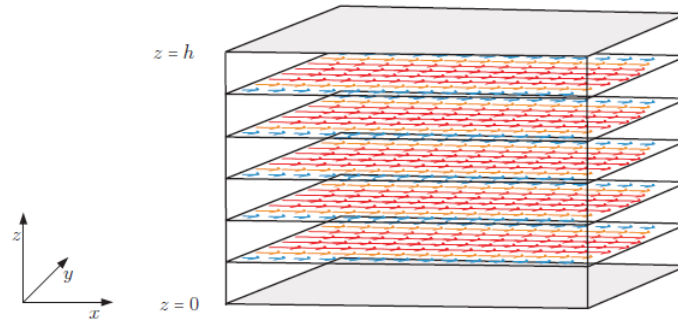


Abb. 6: Rekonstruktion der dritten Geschwindigkeitskomponente mithilfe der Kontinuitätsgleichung.

In den Messungen werden folglich phasengetriggert in 21 Fokalebene im Abstand  $\Delta z = 3.3 \mu\text{m}$  die Geschwindigkeitskomponenten  $(u, v)$  gemessen, hinzu kommen die obere und die untere Wand des Mikrokanals, wo offensichtlich die Haftbedingung erfüllt ist. Der vertikale Abstand  $\Delta z$  dieser Messebenen ist etwas kleiner als die sog. Korrelationstiefe  $z_{\text{Korr}} \cong 4.0 \mu\text{m}$ , die den Bereich um die Fokalebene charakterisiert, der in die Messungen tatsächlich eingeht (vgl. Olsen und Adrian (2000)). Innerhalb der Messebenen wird eine räumliche Auflösung von  $\Delta x = \Delta y = 5 \mu\text{m}$  erreicht. Berechnet wird dann das Geschwindigkeitsfeld  $(u, w)$  im vertikalen Mittenschnitt ( $y = \text{konstant}$ ) des Mikrokanals. Da erwartungsgemäß kaum eine Abhängigkeit von  $y$  in diesem Bereich besteht, werden symmetrisch um diesen Mittenschnitt insgesamt 12 vertikale Ebenen der gemessenen Komponenten  $(u, v)$  gemittelt, um das Rauschen im Integrationsergebnis zu reduzieren. Zusammenfassend gelingt es also, die vertikale Geschwindigkeitskomponente  $w$  bei guter Genauigkeit zu rekonstruieren.

### Numerische Simulation der Partikelbewegung

Gewöhnlich kann aus der Partikelbewegung, etwa im PIV-Verfahren, direkt auf die Strömung geschlossen werden. Dies setzt voraus, dass die Strömungskräfte die einzigen wirkenden Kräfte auf die Partikel darstellen und dass die Partikel der Strömung möglichst perfekt folgen. Hierzu ist es meist ausreichend auftriebsneutrale und kleine Partikel zu verwenden, weil so die Auftriebs- und die Trägheitskräfte klein gehalten werden, wobei letzteres durch eine kleine Stokes-Zahl charakterisiert werden kann. Im vorliegenden Fall sind jedoch aufgrund der negativen Oberflächenladung der Partikel, im Zusammenspiel mit den angelegten komplexen elektrischen Feldern, Coulomb-Kräfte zu erwarten, die gleichfalls auf die Partikel wirken. Es wird also notwendig zu prüfen, wie sich die Partikel infolge der Strömungs- und der Coulomb-Kräfte bewegen. Hierzu werden mit dem Langrange-Verfahren Simulationen bei Berücksichtigung beider Kräfte ausgeführt. Basis hierfür ist die Bewegungsgleichung eines Partikels gemäß

$$m_p \frac{d\vec{u}_p}{dt} = 3\eta\pi d_p (\vec{u}_f - \vec{u}_p) - \zeta\pi\epsilon \frac{d_p^2}{\lambda_D} \nabla\varphi, \quad (2)$$

die in der Zeit zu integrieren ist. Hierin sind  $m_p$  die Partikelmasse,  $d_p$  der Partikeldurchmesser,  $\eta$  die dynamische Viskosität der Flüssigkeit,  $\zeta$  das Zeta-Potential an der Partikeloberfläche,  $\epsilon = \epsilon_0 \epsilon_f$  die Dielektrizitätskonstante der Flüssigkeit,  $\varphi$  das elektrische Potentialfeld,  $\lambda_D$  die Debye-Länge, sowie  $\vec{u}_f, \vec{u}_p$  die Geschwindigkeiten der Flüssigkeit und des Partikels. Sowohl das elektrische Feld als auch das (elektroosmotische) Strömungsfeld (vgl. Abb. 2,3) stehen aus den Strömungssimulationen zur Verfügung, sämtliche anderen Parameter in Gl.

(2) sind recht gut bekannt und können entsprechend den experimentellen Gegebenheiten vorgegeben werden. Ein typisches Simulationsergebnis ist in Abb. 7 gegeben.

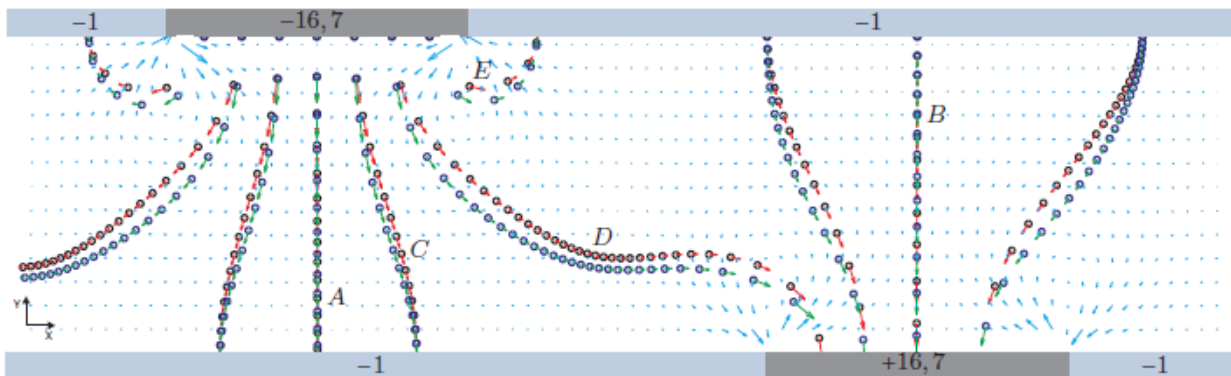


Abb. 7: Bewegung der Partikel nur aufgrund der Coulomb-Kräfte (rot) und aufgrund beider Kräfte (Coulomb- und Strömungskräfte, grün).

Abb. 7 zeigt die Bewegung der Partikel rein infolge der Coulomb-Kräfte, im Wesentlichen parallel zu den elektrischen Feldlinien, von der negativ geladenen Elektrode zur positiv geladenen Elektrode (grüne Pfeile). Wird die Polarität der Elektroden vertauscht, kehrt sich auch die Bewegungsrichtung der Partikel um. Diese rein durch elektrische Kräfte verursachte Partikelbewegung wird als Elektrophorese bezeichnet. Treten nun zusätzlich Strömungskräfte infolge der elektroosmotischen Strömung hinzu, so kommt es lediglich zu einer geringen Änderung der Partikelbewegung (rote Pfeile). Die elektroosmotische Strömung ist im Übrigen hinterlegt (hellblau) dargestellt. Wir können demnach feststellen, dass die elektrophoretische Partikelbewegung dominiert und nur durch schwache Strömungskräfte überlagert wird. Die Partikel folgen also kaum der elektroosmotischen Strömung und deswegen kann diese nicht ohne weiteres aus der Partikelbewegung abgeleitet werden. Diese Problematik tritt im Übrigen, in Anwesenheit elektrischer Felder, für alle partikelbasierten Messverfahren auf, denn zur Vermeidung von Agglomeration sind fast alle Partikel elektrisch nicht neutral, d.h. sie weisen in der Regel ein negatives Zeta-Potential auf.

### Ergebnisse zur elektroosmotischen Strömung

Wir haben anhand der numerischen Simulationen (vgl. Abb. 2,3) bereits diskutiert, dass die elektroosmotische Strömung, unabhängig von der Polarität der Elektroden, die gleiche Topologie und Strömungsrichtung aufweist. Weiterhin zeigen die Simulationen zur Partikelbewegung (vgl. Abb. 7), dass die elektrophoretische Bewegung der Partikel bei Vertauschung der Elektrodenpolarität ihre Richtung umkehrt. Es ist demnach naheliegend, zwei Geschwindigkeitsfelder für zwei gegensätzliche Polaritäten zu messen und anschließend zu mitteln. Durch diese Operation wird die elektrophoretische Bewegung der Partikel eliminiert, denn diese Bewegung erfolgt bei der zweiten Messung entgegengesetzt. Wichtig bleibt dabei, dass die Zeitspanne  $\Delta t$  für beide angelegte Polaritäten gleich gewählt wird. Es zeigt sich weiterhin, dass statt der Verwendung eines Paares von Geschwindigkeitsfeldern, das Ergebnis dadurch verbessert werden kann, dass 5-10 Paare von Geschwindigkeitsfeldern bei der Mittelung verwendet werden.

In Abb. 8 ist das so erhaltene elektroosmotische Geschwindigkeitsfeld ( $u, w$ ) im vertikalen Mittenschnitt des Mikrokanals für einen Elektrodenversatz von 200% dargestellt. Wir erkennen zweifellos, dass über der unteren Elektrode ein symmetrisches Wirbelpaar auftritt, wobei beide Wirbelkerne nahe der Elektrodenkante liegen. Beide Wirbel drehen zudem zur Mitte der Elektrode hin. Die Topologie und Richtung dieser Strömung ist, zumindest nahe der Elektrode, in guter Übereinstimmung mit den numerischen Simulationen in Abb. 2.

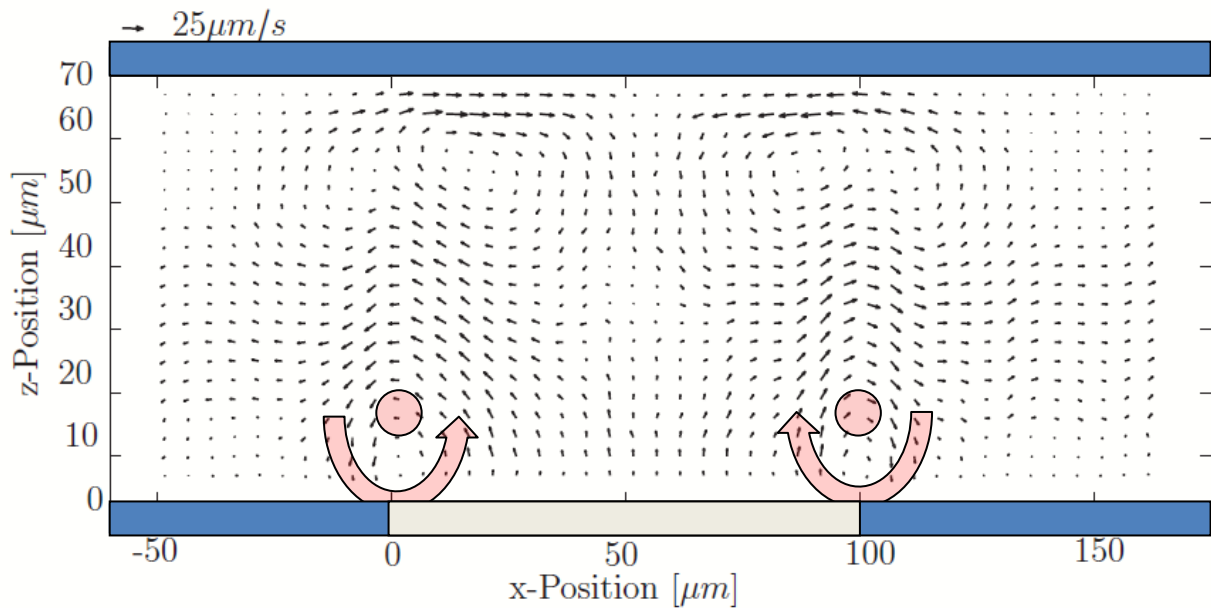


Abb. 8: Extrahierte elektroosmotische Strömung ( $u,w$ ) bei einem Elektrodenversatz von 200%.

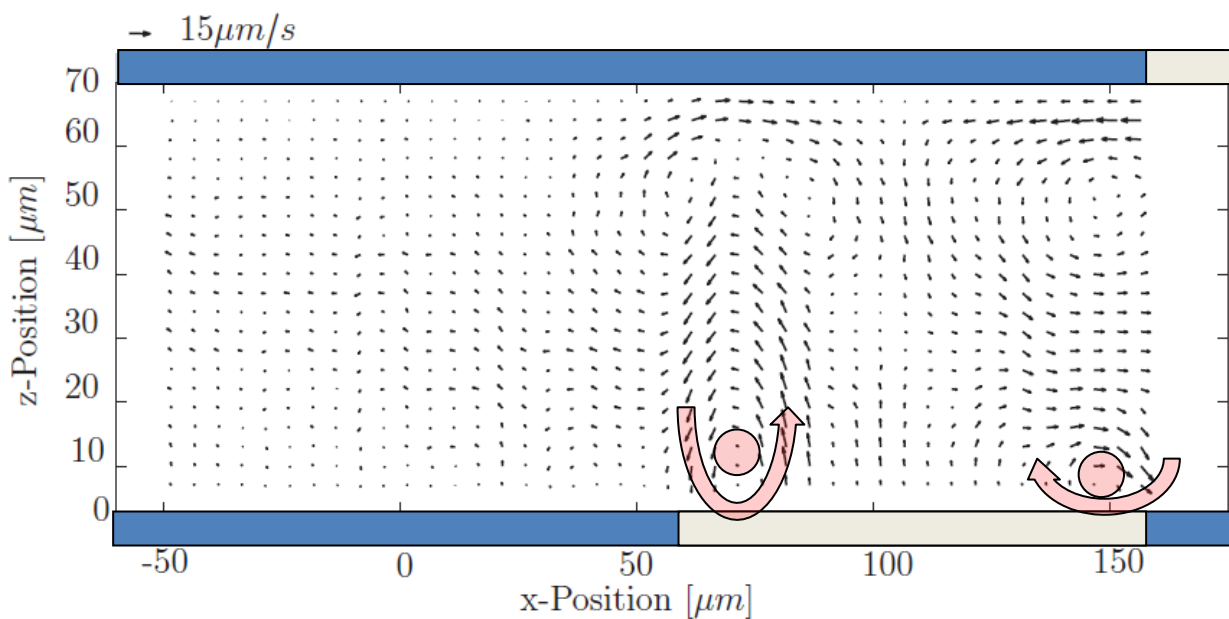


Abb. 9: Extrahierte elektroosmotische Strömung ( $u,w$ ) bei einem Elektrodenversatz von 100%.

Abb. 9 zeigt das extrahierte elektroosmotische Strömungsfeld ( $u,w$ ) im vertikalen Mittenschnitt des Mikrokanals für einen Elektrodenversatz von 100%. Deutlich ist zu erkennen, dass das Wirbelpaar in diesem Fall eine Unsymmetrie aufweist, wobei beide Wirbel auch hier zur Elektrodenmitte hin drehen und die Wirbelkerne nahe der Elektrodenkante sitzen. Die Topologie und Richtung der Strömung naher der Elektrode ist wiederum in guter Übereinstimmung mit den numerischen Simulationen, die in Abb. 3 gezeigt sind.

## Zusammenfassung

Für einen rechteckigen Mikrokanal von  $70\ \mu\text{m} \times 200\ \mu\text{m}$  Querschnitt, mit internen Elektroden, werden zur Validierung des Simulationsmodells  $\mu\text{PIV}$ -Messungen durchgeführt, um die elektroosmotische Strömung der Flüssigkeit zu erfassen. Es zeigt sich zum einen, dass trotz optischen Zugangs von zwei Seiten, eine Messung der zwei relevanten Geschwindigkeitskomponenten nicht direkt möglich erscheint. Eine Abhilfe würde hier ein stereoskopisches  $\mu\text{PIV}$ -System bieten, welches jedoch nicht zur Verfügung stand. Gleichwohl gelingt es, durch vollständiges Vermessen der zugänglichen Geschwindigkeitskomponenten im Volumen des Mikrokanals, die dritte Geschwindigkeitskomponente zu rekonstruieren. Hierzu werden aus der Kontinuitätsgleichung zwei Integrationsvorschriften abgeleitet und in Verbindung mit dem „meeting-point“-Verfahren angewandt. Im Ergebnis gelingt es so, die fehlende Geschwindigkeitskomponente im gesamten Volumen des Mikrokanals zu berechnen.

Es zeigt sich weiter, dass durch die Anwendung komplexer elektrischer Felder im Mikrokanal, in Verbindung mit einer negativen Oberflächenladung auf den Partikeln, starke elektrische Kräfte auf die Partikel wirken. Diese (elektrophoretischen) Kräfte sind deutlich stärker als die Strömungskräfte infolge der elektroosmotischen Strömung. So zeigen die Simulationen zur Partikelbewegung elektrophoretische Partikelgeschwindigkeiten bis ca.  $150\ \mu\text{m/s}$ , während die elektroosmotische Strömung nur Geschwindigkeiten bis ca.  $25\ \mu\text{m/s}$  aufweist. Trotz der dominierenden elektrophoretischen Partikelbewegung gelingt es gleichwohl, die elektroosmotische Strömung zu extrahieren. Dies wird möglich durch Ausnutzung des unterschiedlichen Verhaltens beider Kräfte bei der Invertierung des angelegten elektrischen Feldes.

## Literatur

**Bown, M.R., McInnes, J.M., Allen, R.W.K., Zimmermann, W.B.J., 2006:** "Three-dimensional, three-component velocity measurements using stereoscopic micro-PIV and PTV", Meas. Sci. Technology, 17, pp. 2175-2185.

**Gizewski, C., 2016:** "Untersuchung elektrokinetischer Strömungen in Mikrokanälen mit internen Elektroden", Dissertation TU Dortmund, Shaker Verlag, Aachen, 2017.

**Meinhart, C.D., Wereley, S.T., Santiago, J.G., 1999:** "PIV measurements of a microchannel flow", Exp. Fluids, 27, pp. 414-419.

**Olsen, M.G., Adrian, R., 2000:** "Out-of-focus effects on particle image visibility and correlation in microscopic particle image velocimetry", Exp. Fluids, 29, pp. 166-174.

**Santiago, J., Wereley, S., Meinhart, C., Adrian, R., 1998:** "A particle image velocimetry system for microfluidics", Exp. Fluids, 25, pp. 316-319.

**Stieglitz, I., Ehrhard, P., 2010:** "A hybrid model for the simulation of electroosmotic flows in microchannels, induced by internal electrodes", Proc. 8<sup>th</sup> Int. Conf. Nano-, Micro-, Minichannels (ICNMM), Aug. 1-5, 2010, Montreal, Canada, pp. 289-295.